

ケステライト化合物 $\text{Cu}_2\text{ZnSn}(\text{S}_x, \text{Se}_{1-x})_4$ 単結晶中の固有散乱メカニズム

Intrinsic Scattering Mechanisms in Kesterite Compounds

$\text{Cu}_2\text{ZnSn}(\text{S}_x, \text{Se}_{1-x})_4$ single crystal

京大院工¹ 米ユタ大², 九大応力研³, 宮崎大工⁴, 学振特別研究員 PD⁵

○永岡 章^{1,5}, Michael A. Scarpulla², 柿本 浩一³, 吉野 賢二⁴, 野瀬 嘉太郎¹

Kyoto Univ.¹, Utah Univ.², Kyushu Univ.³, Miyazaki Univ.⁴, JSPS Research Fellow⁵

○Akira Nagaoka^{1,5}, Michael A. Scarpulla², Koichi Kakimoto³, Kenji Yoshino⁴, Yoshitaro Nose¹

E-mail: nagaoka.akira.34x@st.kyoto-u.ac.jp

【はじめに】

ケステライト化合物 $\text{Cu}_2\text{ZnSnS}_4$ (CZTS)、 $\text{Cu}_2\text{ZnSnSe}_4$ (CZTSe)、 $\text{Cu}_2\text{ZnSn}(\text{S}_x, \text{Se}_{1-x})_4$ (CZTSSe)は、現在高い変換効率を達成している $\text{Cu}(\text{In}, \text{Ga})\text{Se}_2$ (CIGS)の代替材料として期待されている。CZTS系太陽電池は現在 12.6%の変換効率を達成しているが CIGS 太陽電池の 20%以上の変換効率と比較するとその効率は低く、更なる研究が必要である¹⁾。現在、薄膜多結晶を用いた CZTS 系太陽電池デバイスへの応用研究は活発に報告されている一方で基礎研究である単結晶成長及び単結晶を用いた基礎物性評価はほとんど報告されていない。我々は、これまでに基礎研究である CZTSSe 単結晶技術を確立し、単結晶を用いて電気伝導メカニズムおよび Na ドーピング効果、光生成キャリアの緩和、局在ダイナミクス、偏光ラマン測定による構造解析を中心とした報告を行ってきた²⁻⁶⁾。更なる高効率化にむけて伝導プロセスを理解し、制御するためにはキャリアの固有散乱過程を理解することが必要である。特にケステライト化合物は固有点欠密度が高いため不純物散乱の影響は大きいと考えられる。本発表では、移動度温度変化から不純物散乱を含めた複数の散乱過程を用いてケステライト化合物の散乱メカニズムを説明する。

【実験方法】

溶液成長である移動ヒーター法 (THM) を用いて $\text{CZTS}_x\text{Se}_{1-x}$ ($x=0, 0.5, 1.0$) 単結晶サンプルを作製した⁷⁾。サンプルは $5 \text{ mm} \times 5 \text{ mm} \times 0.5 \text{ mm}$ に加工し、Au 電極を蒸着で作製した。移動度は Hall 効果測定から磁場 0.55 T、測定温度 20~300 K において Van der Pauw 法を用いて測定した。

【結果・考察】

$\text{CZTS}_x\text{Se}_{1-x}$ ($x=0, 0.5, 1.0$) のホール移動度温度変化を Fig. 1 に示す。100 K 以下において、移動度は $\sim T^{1.7-2.5}$ 、室温付近においては $\sim T^{-(0.9-1.1)}$ に比例し、一般的な低温におけるイオン化不純物散乱 $\sim T^{1.5}$ と室温付近のフォノン散乱 $\sim T^{-1.5}$ を用いて説明する事は困難である。我々はすでに 100K 以下の低温では、ホッピング伝導が支配的であること、100 meV 以上の深い欠陥準位を持つことを報告している^{2,3)}。これらの結果からホッピング伝導(不純物散乱)と中性不純物散乱、多元系材料であるため極性光学散乱、格子散乱はフォノン散乱と非極性光学散乱を用いて固有散乱メカニズムへアプローチを行った。特に室温付近においてはフォノン散乱と非極性光学散乱過程が 70% 以上を占める結果となった。組成と各散乱の相関関係、散乱過程からアニール効果の有用性については当日報告する。

【引用文献】

- 1) W. Wang *et al.*, Adv. Energy Mater. **4** (2014) 1301465.
- 2) A. Nagaoka *et al.*, Appl. Phys. Lett. **103** (2013) 112107.
- 3) A. Nagaoka *et al.*, Appl. Phys. Lett. **104** (2014) 152101.
- 4) L. Q. Phuong and A. Nagaoka *et al.*, Appl. Phys. Lett. **103** (2013) 191902.
- 5) L. Q. Phuong and A. Nagaoka *et al.*, Appl. Phys. Lett. **104** (2014) 081907.
- 6) D. Nam and A. Nagaoka *et al.*, Appl. Phys. Lett. **105** (2014) 173903.
- 7) A. Nagaoka *et al.*, J. Crystal Growth **341** (2012) 38.

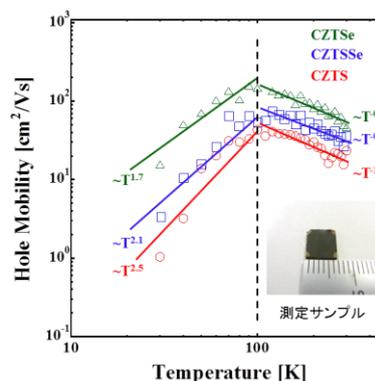


Fig. 1 $\text{CZTS}_x\text{Se}_{1-x}$ 移動度温度変化